

## 〈研究発表〉

## 脱アンモニア処理による下水消化汚泥脱水分離液の高濃度窒素処理の検討

渡辺 哲文<sup>1)</sup>, 川久保 祐貴<sup>1)</sup>, Lai Minh Quan<sup>1)</sup>福崎 康博<sup>1)</sup>, 中村 安宏<sup>1)</sup>, 後藤 浩之<sup>1)</sup>中村 永秀<sup>2)</sup>, 石田 隆二<sup>2)</sup>, 望月 ゆか<sup>2)</sup><sup>1)</sup> ㈱明電舎 水・環境事業部 膜・水処理プラント部

(〒452-8602 清須市西枇杷島町一反五畝割496-1 E-mail: watanabe-te@mb.meidensha.co.jp)

<sup>2)</sup> 横浜市環境創造局 下水道計画調整部 下水道事業推進課 (〒231-0016 横浜市中区真砂町2-22)

## 概要

横浜市と明電舎は平成23年3月から嫌気性アンモニア酸化反応を用いた嫌気性消化汚泥脱水分離液の高濃度窒素処理に関して共同研究を行っている。処理方式による得失を比較するため、これまで2槽式、固定床1槽式連続処理の実証実験を北部汚泥資源化センターにて実施した。今回、欧米で普及している回分方式による1槽型脱アンモニア処理のパイロットプラント実験を実施し、窒素処理特性等の知見を得たので報告する。

キーワード：嫌気性アンモニア酸化、脱アンモニア、脱水分離液、窒素処理

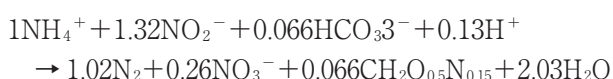
## 1. はじめに

横浜市と明電舎は嫌気性アンモニア酸化反応（以下「AX」と称す）を用いた嫌気性消化汚泥脱水分離液の高濃度窒素処理について共同研究を行っており、2槽型及び1槽型連続式のAX処理を適用したパイロット実験を通して処理方式の比較検討を実施した<sup>1)</sup>。

日本では2槽型の開発が先行しているが、日本国外においては、AX技術による実設備導入は回分処理を用いた1槽型が多く、2槽型に比べ処理設備の簡素化、機器点数の削減などコストメリットが大きいばかりでなく、運転管理が容易であることも手伝って広く普及するに至っている。そこで今回新たに、回分式1槽型脱アンモニア処理（以下「脱アンモニア処理」と称す）の処理性、特長を検証する目的として、脱水分離液のパイロット処理実験を実施し、幾つかの知見を得たのでここに報告する。

## 2. 嫌気性アンモニア酸化反応

嫌気性アンモニア酸化と呼ばれる反応は、1995年に発表された微生物による全く新しい窒素の代謝経路である。AX反応は $\text{NH}_4^+$ を電子供与体、 $\text{NO}_2^-$ を電子受容体とした独立栄養細菌による脱窒反応であり、以下の化学量論式が提唱されている<sup>2)</sup>。



上式から、アンモニウムイオン1 molに対し亜硝酸イオンが1.32 mol反応し、窒素ガス1.02 molが生成されることが本反応の最も重要な特徴である。従来型硝化脱窒とAXの代謝経路をFig. 1に示す。(a)では、アンモニア酸化細菌（以下「AOB」と称す）及び亜硝酸酸化細菌の代謝を利用し、流入アンモニアの全量を硝酸まで硝化する必要がある。それに対し(b)のAXではAOBだけの代謝を利用し、式からmol比56.9%の流入アンモニアを亜硝酸まで硝化（部分亜硝酸化、以下Partial Nitritation:「PN」と称す）すれば生成した亜硝酸は残ったアンモニアとともにAX細菌の代謝によって除去される。このAX反応を利用した窒素処理は以下の利点がある。

- ① 従来型脱窒に比べ窒素除去速度が速く、本反応を利用した反応槽は高い窒素容積負荷（以下Nitrogen Loading Rate:「NLR」と称す）を許容でき、反応槽が小形化できる。
- ② 硝酸型の脱窒ではなくPN処理をすることで、アンモニアと亜硝酸から脱窒するため、酸素供給量をおおよそ半減でき、曝気に伴う電力コストを低減できる。
- ③ 従来型脱窒では、窒素に対しBODなど水素供与体が不足する低C/N比の場合、メタノールなどの有機物の添加が必要であったが、本反応は独立栄養性のため有機物が不要であり、ランニングコストを低減できる。
- ④ AX細菌は収率が小さく、処理に伴う余剰汚泥

の発生量が少ないため、汚泥処分コストを低減できる。

以上の利点から、従来型硝化脱窒処理に比べ AX 反応を利用した窒素処理は、省スペース化及び省コスト化を望める有望な技術であり、注目されている。

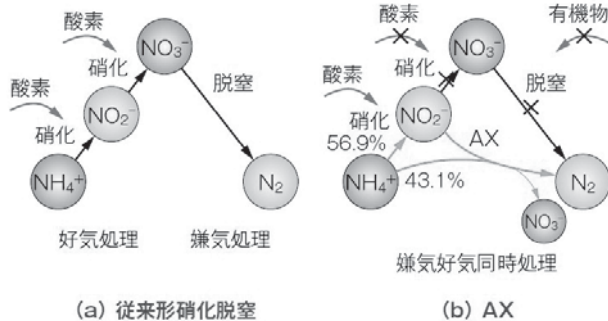


Fig. 1 Nitrogen pathway of conventional denitrification and AX.

### 3. 実験方法

#### 3.1 原水水質

本実験では、横浜市北部汚泥資源化センターの消化汚泥脱水分離液を原水として使用した。実験期間中の脱水分離液の主な水質の平均値を **Table 1** に示す。原水的全窒素のうち約 98% がアンモニア性窒素（以下「 $\text{NH}_4\text{-N}$ 」とする）であり、 $\text{NH}_4\text{-N}$  は実験期間中安定しており、その平均値は  $994 \text{ mg-N/L}$  と高濃度であった。また、BOD は  $31.6 \text{ mg/L}$  であり、C/N 比が 0.03 と低く脱アンモニア処理に適した廃水と考えられた。

#### 3.2 実験プラント

脱アンモニア処理の処理フロー模式図を **Fig. 2** に示す。受水槽から原水をポンプにて原水調整槽に送液し、調整槽で一部 SS を沈降分離した後、流入水として脱アンモニア処理槽に供給した。処理槽は、有効容積  $6.6 \text{ m}^3$  の円筒形反応槽であり、満水時の水深は  $4.0 \text{ m}$  とした。本処理方式は回分処理であり、原水は調

Table 1 Averaged analysis data of dewatering centrate during the pilot test.

項目	濃度
全窒素	$1019 \text{ mg-N/L}$
アンモニア性窒素	$994 \text{ mg-N/L}$
亜硝酸性窒素	N.D $\text{ mg-N/L}$
硝酸性窒素	$0.1 \text{ mg-N/L}$
BOD	$31.6 \text{ mg/L}$
CODcr	$281 \text{ mg/L}$
SS	$87 \text{ mg/L}$
全りん	$91.7 \text{ mg/L}$
アルカリ度	$3667 \text{ mg-CaCO}_3\text{/L}$

整槽に一旦溜められ、流入水として回分処理の各工程に合わせて間欠的に処理槽に供給した。処理槽では曝気と攪拌により好気状態と無酸素状態が交互に制御され、 $\text{NH}_4\text{-N}$  を亜硝酸性窒素（以下「 $\text{NO}_2\text{-N}$ 」と称す）に酸化する硝化反応と、 $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_2\text{-N}$  から窒素ガスに変換する AX 反応が同時に進行するように、低 DO 条件で脱アンモニア処理を制御した<sup>3)</sup>。満水位に到達し、1 サイクルの反応時間が終了した後、曝気と攪拌を停止して沈殿処理を実施した。沈殿による固液分離で生じた上澄みだけを処理水として排水した。そして、次のサイクルに進み同様の工程を繰り返した。処理水は一旦処理水槽で受け、既設水処理施設へ戻した。

脱アンモニア処理の特長は、**Fig. 2** に示しているサイクロンセパレータ（以下「サイクロン」と称す）による汚泥の選別である。処理槽の汚泥には硝化菌と AX 細菌が共存している。増殖速度の遅い AX 細菌はグラニュールを形成する特性があり、より高密度な汚泥となる。一方、比較的増殖の速い硝化菌は軽いフロック状の汚泥を形成する。増殖速度の違いによる活性のアンバランスを無くすため、増殖の遅い AX 細菌を処理槽内に保持したまま、増殖の速い硝化菌は系外に除去してバランスを維持する必要がある。サイクロンに流入した汚泥は高速で回転し強い遠心力と重力により、密度の高い AX 汚泥は返送汚泥としてサイクロンのアンダーフローから処理槽内へ戻され、軽い

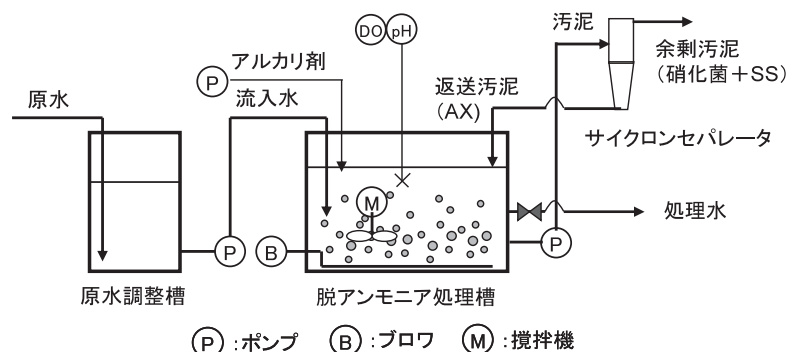


Fig. 2 Schematic flow diagram of the pilot plant.

硝化菌フロックはオーバーフローから余剰汚泥として排出される。これにより、窒素負荷に応じて処理槽内の汚泥の構成をサイクロンにより調整することが可能となる。また、サイクロンでは原水に含まれる軽いSSも処理槽に蓄積しないようオーバーフローから余剰汚泥として排出することができるため、流入SSもある程度許容することができる。

### 3.3 実験方法

脱アンモニア処理の立上では、MLSSが約700 mg/Lとなるように種汚泥を植種後、脱水分離液の通水量を段階的に増やして窒素容積負荷 NLR を高め、定格処理水量である 4.6 m<sup>3</sup>/日まで増加させた。NLR の目標値は 0.70 kgN/m<sup>3</sup>/日とし、定格運転中に目標窒素除去率は 80% 以上とした。1日あたりの回分処理回数は 3 回 (各 8.0 時間) とした。目標負荷到達後、処理槽内の汚泥濃度を処理能力に見合った量、質に調整し、一定処理水量での運転を実施した。脱水分離液中のアルカリ度は、流入 NH<sub>4</sub>-N の約半量を NO<sub>2</sub>-N に硝化するのに不足していたため、アルカリ剤を添加し不足を補った。アルカリ剤は炭酸水素ナトリウム (0.5 M) と炭酸ナトリウム (0.5 M) 混合液を使用した。また、本実験では加温設備を設けず、水温は外気変動に影響される中での実験 Run1 (2013 年 4~8 月) と、加温設

備を設けて槽内水温を 30℃ 程度に維持しての高負荷実験 Run2 (2013 年 11 月~2014 年 7 月) を実施した。原水、流入水と処理水の水質 (Table 1 に示す項目)、及び処理槽と返送汚泥の汚泥濃度 (MLSS/VSS) を定期的に分析した。

## 4. 実験結果及び考察

種汚泥植種後、硝化と AX の活性を把握しながら目標負荷到達まで立上げ運転を実施した。Run1 の日窒素負荷、処理水量、NLR 及び工程水の各態窒素濃度、窒素除去率の変化を Fig. 3, Fig. 4 にそれぞれ示す。

Run1 は加温せずに行ったため運転開始当初、外気温が低く 25℃ 以下の水温で推移することもあった。そのため、微生物の活性上昇が緩やかで窒素負荷が上げられない期間が続いた。低水温のため NLR を 0.03 kgN/m<sup>3</sup>/日に設定し非常に低い負荷から運転を開始した。低水温では AOB の活性が比較的高くなりやすく、AX 細菌への NO<sub>2</sub>-N 阻害を懸念し、曝気時間を短く制限して NO<sub>2</sub>-N 生成を制御した。また、高い DO も AX 細菌に対して阻害となるため、比較的低い 0.5 mg/L 程度の DO となるように調整した<sup>4)</sup>。また、NO<sub>2</sub>-N から硝酸性窒素 (以下「NO<sub>3</sub>-N」と称す) へ

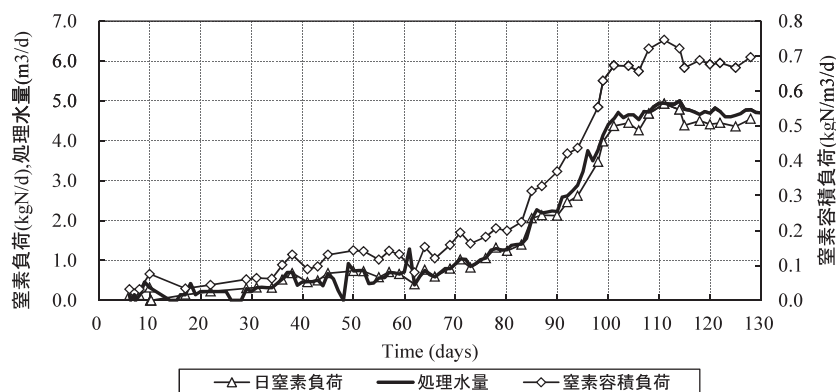


Fig. 3 Profile of nitrogen load, flow rate and nitrogen volumetric load.

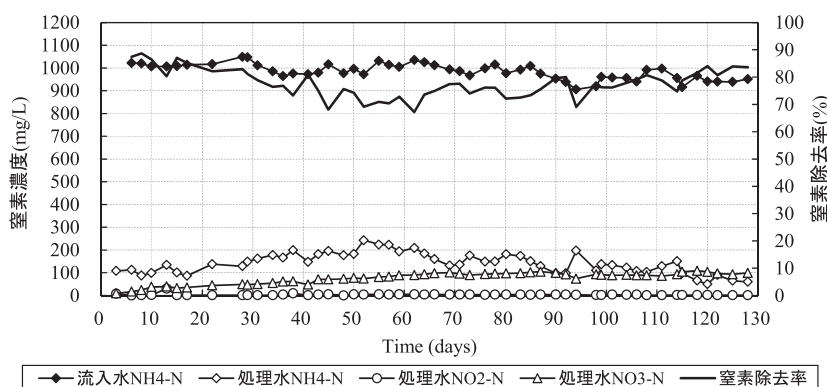


Fig. 4 Profile of nitrogen conc. and nitrogen removal rate.

の好気性亜硝酸酸化反応を抑制するために、槽内  $\text{NH}_4\text{-N}$  を  $100 \text{ mg-N/L}$  程度に高めて維持し、遊離アンモニアにより亜硝酸酸化細菌の活性を抑制した。40 日目頃までは外気温が低く低水温期間が続き、NLR が  $0.10 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$  以下と停滞した。その後、徐々に外気温が上昇し、80 日目頃から処理槽の水温も継続的に  $25^\circ\text{C}$  以上を維持できるようになり、脱アンモニア活性の上昇が見られたので窒素負荷を高めていった。窒素負荷の上昇とともに 60 日目には MLSS が  $450 \text{ mg/L}$ 、90 日目には  $1,500 \text{ mg/L}$ 、104 日目には約  $2,500 \text{ mg/L}$  まで高まり、処理水量は定格値の  $4.6 \text{ m}^3/\text{日}$ 、NLR も  $0.7 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$  に到達した。目標負荷に到達した後、処理槽の MLSS の目標値を  $1,500 \text{ mg/L}$  程度となるようにサイクロンの運転を調整し、窒素除去性能を維持した。目標負荷到達後 104 日目から約 26 日間にわたる処理特性の平均値は、処理水量が  $4.7 \text{ m}^3/\text{日}$ 、NLR は  $0.7 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$ 、窒素除去率 80.7% と目標の処理能力を達成し、安定した窒素処理性が確認された。水温が  $25^\circ\text{C}$  以上あれば窒素負荷の上昇速度も速く、脱アンモニア処理が脱水分離液からの窒素除去に適用可能であることを実証した。

Run2 では、脱アンモニア処理槽内水温を  $30^\circ\text{C}$  程度に維持しながら運転実証を行った。その結果、41 日間にわたる処理水量一定での運転において、平均処理水量が  $6.8 \text{ m}^3/\text{日}$ 、平均 NLR が  $0.97 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$ 、平均窒素除去率 87% と高い処理能力、かつ安定した窒素処理性が確認された。

既報の実験<sup>1)</sup>と本実験から得られた知見を基に、他方式との比較を **Table 2** にまとめた。2 槽型連続処理では、 $1.5 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$  と高負荷に対応できるが、部分亜硝酸化槽、AX 反応槽、その他沈殿槽や中継槽が必要であり、機器点数が多くコスト高になると共に運転管理の手間もかかった。また部分亜硝酸化槽は比較的高濃度の  $\text{NO}_2\text{-N}$  が存在するため温室効果ガスである一酸化二窒素（以下「 $\text{N}_2\text{O}$ 」と称す）の生成放出が懸念された。一方、固定床による 1 槽型連続処理では、機器、制御点数も少なく、運転管理も容易であったが、処理槽内の汚泥が担体に付着固定化されているため硝化菌と AX 細菌の汚泥量の管理が難しい。そのため、処理槽に流入する SS が槽内の生物膜面に付着して蓄積し、微生物と基質との接触面積が制限されることにより窒素処理性が悪化したり、流入  $\text{NH}_4\text{-N}$  の負荷変動がある場合には、変動に追従して処理できる幅が狭い等、水質管理上で注意を要する点が確認された。これらに対し、脱アンモニア処理は、窒素除去速度は若干低いが、槽・機器構成がシンプルである点、生物保持担体を使用しない点など、コスト抑制の可能性に加え、サイクロンによる汚泥調整により負荷変動や流入

**Table 2** Comparison between 3 types of denitrogen process using AX

項目	2槽型	1槽型	脱アンモニア処理
窒素除去速度 ( $\text{kgN/m}^3/\text{日}$ )	1.5	0.71	0.56/0.84 ※
窒素除去率 (%)	85	88	80.7/87 ※
微生物担体	不要	要	不要
原水SS	△	×	○
汚泥管理	○	×	○
運転管理	△	○	○
負荷変動	○	△	○
処理コスト	×	○	○

※ 左はRun 1、右はRun 2の結果を示す。

SS に対応しやすいといった運転管理面のメリットが確認できた。また、処理槽内の  $\text{NO}_2\text{-N}$  を低濃度に保ちながら運転するため、 $\text{N}_2\text{O}$  の発生・排出抑制も期待できると考えられた。

## 5. ま と め

本実験では脱アンモニア処理による消化汚泥脱水分離液の窒素除去について検討し以下の結論を得た。

- (1) 脱アンモニア処理を適用した処理実験により、Run1 では窒素容積負荷  $0.7 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$  で運転し、平均窒素除去率 80.7% が得られ、脱水分離液処理への適用が可能であることが示された。
- (2) Run2 では窒素容積負荷  $0.98 \text{ kgN/m}^3/\text{日}$  で運転し、平均窒素除去率 87% と高くかつ安定した窒素処理性を確認した。
- (3) 脱アンモニア処理は、これまでに実証試験してきた 2 槽型連続処理、固定床 1 槽型連続処理と比較し、窒素除去速度は劣るが、低コスト化、運転管理の容易さ、汚泥の管理などの面で優れる方式であると考えられた。

## 参 考 文 献

- 1) 渡辺哲文, 中村安宏, 福崎康博, 川久保祐貴, Lai Minh Quan, 高瀬長武, 末永敦士, 中村永秀, 小松弘明, 望月ゆか: 嫌気性アンモニア酸化反応を利用した窒素除去における処理方式の比較検討. 第 50 回下水道研究発表会講演要項集 (2013)
- 2) M. Strous, J. J. Heijnen, J. G. Kuenen and M. S. M. Jetten: The sequencing batch reactor as a powerful tool for the study of slowly growing anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms. Appl. Microbiol. Biotechnol. Vol. 50, pp. 589-596 (1998)
- 3) Wett, B: Development and implementation of a robust deammonification process. Water Science and technology, Vol. 56, No. 7, pp. 81-88 (2007)
- 4) Wett, B., S. Murthy., L. Takacs., M. Hell., G. Bowden., A. Deur., M. O. Shaughnessy: Key Parameters for control of DEMON deammonification process. Water practice, Vol 1, pp. 1-11 (2007)